



Available online: <http://ijhe.tums.ac.ir>

مقاله پژوهشی



ارزیابی کارایی فرایند الکتروپراکسون در تخریب ترکیب دارویی سفتریاکسون از محلول سنتتیک

محمد رضا سمرقندی^۱، علیرضا رحمانی^۱، زهرا دارابی^۲، جمال مهرعلی پور^{۳،۴*}

- ۱- گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران
- ۲- گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی البرز، کرج، ایران
- ۳- گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران
- ۴- کمیته تحقیقات دانشجویی دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران

اطلاعات مقاله: چکیده

زمینه و هدف: فرایند الکتروپراکسون تلفیقی از فرایندهای ازن‌زنی ساده و الکترولیز است که منجر به تولید رادیکال هیدروکسیل و در نهایت تخریب آلاینده می‌گردد. هدف از این مطالعه، امکان‌سنجی فرایند الکتروپراکسون در حذف ترکیب دارویی سفتریاکسون از محلول سنتتیک بود.

تاریخ دریافت: ۹۸/۰۷/۲۴
تاریخ ویرایش: ۹۸/۱۰/۱۶
تاریخ پذیرش: ۹۸/۱۰/۲۱
تاریخ انتشار: ۹۸/۱۲/۲۸

روش بررسی: در این مطالعه تجربی، از راکتور نیمه پیوسته مجهز به چهار الکترود گرافن با ابعاد ۱۰×۲ cm و ضخامت ۳ mm استفاده شد. تاثیر پارامترهای pH (۳-۱۱)، غلظت گاز ازن (۱-۵ mg/min)، جریان الکتریکی مستقیم (۱A-۳)، غلظت اولیه سفتریاکسون (۵-۵۰ mg/L) و دوز رابینده رادیکال (ترت بوتانول برابر با ۲۰ mmol/L) در مدت زمان (۶۰-۱۰ min) مورد بررسی قرار گرفت. اندازه‌گیری غلظت سفتریاکسون با استفاده از دستگاه کروماتوگرافی مایع با کارایی بالا (HPLC)، اندازه‌گیری COD با دستگاه اسپکتروفتومتر (DR6000) و TOC با آنالیزر صورت گرفت.

واژگان کلیدی: فرایند الکتروپراکسون، آنتی‌بیوتیک سفتریاکسون، اکسیژن مورد نیاز شیمیایی، کل کربن آلی، محلول سنتتیک

یافته‌ها: نتایج بیانگر کارایی مناسب این فرایند در تخریب آنتی‌بیوتیک و کاهش COD و TOC حاصل از سفتریاکسون است. شرایط بهینه عبارت است از pH برابر با ۳، جریان الکتریکی برابر با ۳ A، غلظت ازن ورودی برابر با ۵ mg/min، سولفات سدیم به‌عنوان الکترولیت به میزان ۵۰ mmol/L و غلظت اولیه سفتریاکسون برابر با ۵ mg/L در مدت زمان ۳۰ min که ۹۹/۳۹ درصد تخریب آلاینده رخ داد. میزان کارایی فرایند در حذف COD و TOC در مدت زمان ۹۰ min به حداکثر مقدار خود رسید. حضور ترت بوتانول کارایی فرایند را به ۸۳ درصد کاهش داد.

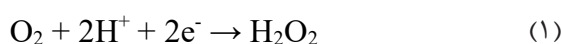
پست الکترونیکی نویسنده مسئول:
Jamalmehralipour@yahoo.com

نتیجه‌گیری: فرایند الکتروپراکسون به‌عنوان یکی از گزینه‌های فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته، توانایی کاهش بار آلودگی صنایع حاوی ترکیبات دارویی به‌ویژه سفتریاکسون را دارا است و به‌عنوان فرایند دوستدار محیط زیست تلقی می‌شود.

مقدمه

در سالیان اخیر ظهور محصولات دارویی در محیط افزایش چشمگیری داشته است. آنتی‌بیوتیک‌ها به دلایل توانایی ایجاد سمیت مزمن و مقاومت آنتی‌بیوتیکی (Antibiotic-resistance) در باکتری‌های بیماری‌زا، اختلال در کارکرد ارگان‌ها مورد توجه قرار گرفته‌اند. آنتی‌بیوتیک‌ها پس از مصرف به شکل ترکیبات اصلی (Parent Compound) و یا متابولیت‌ها (Metabolites) وارد محیط زیست می‌گردند (۱). سفتریاکسون، آنتی‌بیوتیک نسل سوم از خانواده سفالوسپورین، برای مبارزه با باکتری‌های گرم منفی استفاده می‌شوند. سفتریاکسون در فاضلاب و آب‌های سطحی، پساب بیمارستانی و صنایع داروسازی شناسایی شده است که نیازمند حذف این ترکیب قبل از ایجاد مشکل در محیط زیست است (۲، ۳). از جمله فرایندهای حذف می‌توان به فرایندهای فنتون و فوتوفنتون، الکتروشیمیایی، نانوفیلتراسیون، انعقاد شیمیایی و فرایند جذب سطحی اشاره کرد (۴، ۵). در بسیاری از موارد فرایند ازن‌زنی ساده جهت تخریب، معدنی‌سازی و حذف ترکیبات آلی مقاوم دارای کارایی پایین است (۶، ۷) بنابراین از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته (AOP_s) بر مبنای تولید رادیکال‌های اکسید مانند استفاده توام از ازن و هیدروژن پراکساید، ازن و اشعه فرابنفش، فرایند ازن‌زنی توام با فرایند فنتون و فرایند ازن‌زنی کاتالیزوری در حذف آلاینده‌ها و افزایش معدنی‌سازی استفاده می‌شود (۸، ۹). فرایند پراکسون (H₂O₂/O₃) باعث افزایش سرعت تجزیه مولکول ازن، تولید رادیکال هیدروکسیل و افزایش معدنی‌سازی ترکیبات آلی می‌گردد. در این فرایند واکنش مولکول ازن با هیدروژن پراکساید باعث تولید رادیکال‌های هیدروکسیل می‌شود که اکسیدکننده بسیار قوی‌تری نسبت به ازن است (۱۰). از ویژگی‌های این فرایند می‌توان به قابلیت بالا در اکسیداسیون و معدنی‌سازی ترکیبات آلی مقاوم، عدم تشکیل ترکیبات جانبی خطرناک، تولید آب و اکسیژن به‌عنوان محصولات نهایی اشاره کرد (۱۱). فرایند

پراکسون به‌دلیل اضافه نمودن دستی هیدروژن پراکساید دارای ایراداتی همچون خطرات بالای این ترکیب بسیار فعال حین حمل و نقل و استفاده نمودن، از بین رفتن خاصیت در طی مدت نگهداری است. جهت غلبه بر مشکلات فرایند پراکسون، از فرایند الکتروپراکسون استفاده می‌شود. این فرایند تلفیقی از فرایندهای ازن‌زنی و الکترولیز است (۱۲). الکترودها در بخش کاتد می‌توانند به‌صورت الکتريکی اکسیژن و هیدروژن را به هیدروژن پراکساید و مشتقات آن تبدیل نمایند (معادله ۱ و ۲) (۱۰).



هیدروژن پراکساید تولید شده با ازن موجود در محفظه واکنش داده و تولید رادیکال هیدروکسیل می‌نماید. این فرایند دارای قابلیت بالایی در حذف آلاینده‌ها نسبت به فرایندهای ازن‌زنی و الکترولیز دارد (۱۳). از جمله مزایای روش الکتروپراکسون می‌توان به تولید الکتريکی ازن و هیدروژن پراکساید به‌صورت کنترل شده و عدم نیاز به مواد شیمیایی مانند هیدروژن پراکساید یا کاتالیزور اشاره نمود. همچنین راهبری ساده و قابل کنترل دارد، نیازمند تنظیم pH نیست. در نهایت هیچ‌گونه لجنی تولید نمی‌کند و فرایندی امیدوارکننده و دوستدار محیط زیست است (۱۱). Wang و همکاران در سال ۲۰۱۳ میزان کارایی فرایند الکتروپراکسون در تجزیه آلاینده‌های آلی مقاوم در شیرابه محل دفن را مورد بررسی قرار دادند. در این مطالعه بصورت الکتريکی هیدروژن پراکساید از مولکول اکسیژن تولید شد. در مدت زمان چهار ساعته واکنش، فرایند الکتروپراکسون توانست ۸۷ درصد از کل TOC را حذف نماید. درحالی‌که در فرایند ازن‌زنی ساده، پراکسون و الکتروفنتون به ترتیب ۴۵، ۶۵ و ۷۱ درصد از TOC در شرایط مشابه حذف شد (۱۱). Mao و همکاران در سال ۲۰۱۸ با استفاده از فرایند الکتروپراکسون آب‌های سطحی را مورد تصفیه قرار داده‌اند. براساس نتایج این مطالعه

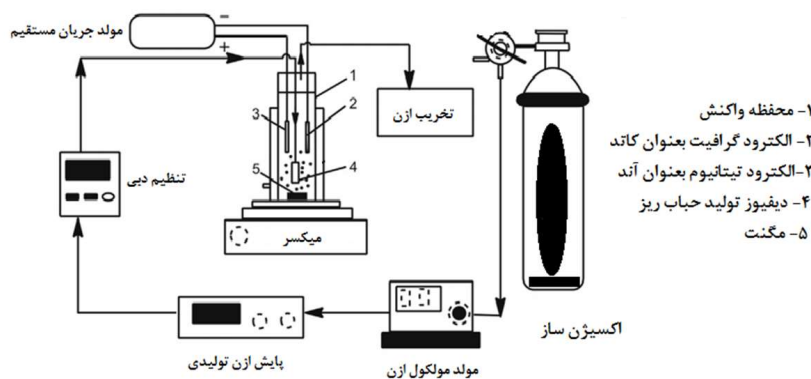
نمونه‌های سنتتیک حاوی آنتی‌بیوتیک سفتریاکسون انجام شد.

- وسایل و مواد مصرفی: سفتریاکسون سدیم (۹۹/۸ درصد) از شرکت البرز دارو و سایر مواد شیمیایی مانند اسید تری فتالیک، اگزالیک تیتانیوم، پتاس، سولفوریک اسید، هیدروکسید سدیم، سولفات سدیم، کلراید سدیم از شرکت‌های مرک و سیگما آلدیج تهیه شدند. وسایل مورد استفاده شامل دستگاه کروماتوگرافی مایع با کارایی بالا (HPLC)، دستگاه اسپکتروفتومتر (DR6000)، TOC آنالیزر، pH متر دیجیتال، میکسر، اکسیژن ساز، دستگاه مولد گاز ازن با توان تولید تا ۵ g/h، مولد جریان الکتریکی مستقیم با توان تولید جریان تا ۵ A و گاز شوی یک لیتری بود. تصویر شماتیک پایلوت در شکل ۱ و ساختار شیمیایی آنتی‌بیوتیک سفتریاکسون در شکل ۲ ارائه شده است.

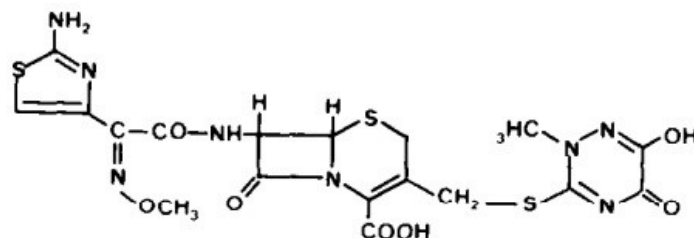
مشخص شده که کارایی فرایند الکتروکواگولاسیون بیش از فرایند پراکسون متداول است و مواد حد واسط (برومات) کمتری تولید می‌شود (۱۴). براساس توضیحات ارائه شده، هدف از این مطالعه، ارزیابی فرایند الکتروپراکسون به‌عنوان یک روش نوین در تخریب ترکیب دارویی سفتریاکسون از محلول سنتتیک است. همچنین در مطالعات تکمیلی مقدار هیدروژن پراکساید و رادیکال هیدروکسیل تولید شده، تاثیر حضور غلظت‌های مختلف الکترولیت، خاصیت هم‌افزایی پارامترها، COD و TOC کاهش یافته در حالت بهینه و سرعت واکنش فرایند مورد مطالعه قرار گرفت. براساس بررسی مطالعات، تاکنون این فرایند در حذف آنتی‌بیوتیک سفتریاکسون مورد بررسی قرار نگرفته است.

مواد و روش‌ها

این مطالعه تجربی با رویکرد کاربردی در پایلوت مقیاس آزمایشگاهی انجام گرفت. آزمایشات بر روی



شکل ۱- تصویر شماتیک پایلوت مورد استفاده در فرایند الکتروپراکسون



شکل ۲- ساختار شیمیایی سفتریاکسون

- بررسی تاثیر پارامترهای اصلی بر فرایند و تعیین شرایط بهینه:

در این بخش از مطالعه، پارامترهای زمان واکنش (min) ۰-۶۰، pH اولیه محلول (۳-۱۱)، غلظت اولیه سفتریاکسون (۵-۵۰ mg/L)، میزان غلظت ازن (۱-۵ mg/L.min) و میزان جریان الکتریکی مستقیم (۱-۳ A) به عنوان متغیرهای اصلی در نظر گرفته شدند و با روش کلاسیک OFAT (One Factor at the Time) مورد بررسی قرار گرفت. در روش OFAT ابتدا یک پارامتر را متغیر در نظر گرفته و باقی پارامترها ثابت هستند، این روش بهینه‌سازی پارامترها را به صورت مرحله به مرحله انجام می‌دهد. در پایان شرایط بهینه فرایند گزارش شد. جهت آنالیز آماری از نرم افزار SPSS,22 و آزمون آماری t-student و آنالیز واریانس با سطح معنی داری ۰/۰۵ انجام گرفت.

- تعیین تاثیر pH بر کارایی فرایند:

در این بخش از مطالعه، ابتدا غلظت ۱۰ mg/L آنتی‌بیوتیک از محلول مادر ساخته شد. غلظت گاز ازن و جریان الکتریکی به ترتیب ۳ mg/L.min و ۲ A در نظر گرفته شد. از ۵۰ mMol/L سدیم سولفات به عنوان الکترولیت استفاده شد. با استفاده از اسید و باز ۰/۱ N، pH نمونه‌ها بر روی ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۱ تنظیم شد و در فواصل زمانی صفر تا ثابت شدن کارایی نمونه برداری صورت گرفت. در خاتمه pH ای که بالاترین حذف را داشت به عنوان pH مناسب گزارش شد.

- تعیین تاثیر جریان الکتریکی بر کارایی فرایند:

در این بخش از مطالعه، ابتدا غلظت ۱۰ mg/L آنتی‌بیوتیک از محلول مادر ساخته شد. pH نمونه‌ها با استفاده از اسید و باز ۰/۱ N بر روی pH مطلوب تنظیم شد. از ۵۰ mMol/L سدیم سولفات به عنوان الکترولیت استفاده شد. در غلظت ازن برابر با ۳ mg/L.min، جریان‌های الکتریکی ۱، ۳ و ۵ A اعمال شد. در نهایت جریانی که بالاترین میزان حذف به دست آمد، به عنوان جریان مناسب انتخاب شد.

- تعیین تاثیر غلظت گاز ازن بر کارایی فرایند:

در این بخش از مطالعه، ابتدا غلظت ۱۰ mg/L آنتی‌بیوتیک از محلول مادر ساخته شد. pH نمونه‌ها با استفاده از اسید و باز ۰/۱ N بر روی pH مطلوب تنظیم شد. از ۵۰ mMol/L سدیم سولفات به عنوان الکترولیت استفاده شد. در جریان‌های الکتریکی مطلوب، غلظت‌های ۱، ۳ و ۵ mg/L.min اعمال شد. در نهایت غلظتی که بالاترین میزان حذف به دست آمد، به عنوان غلظت مناسب گاز ازن انتخاب شد.

- تعیین تاثیر غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک بر کارایی فرایند:

در این بخش از مطالعه، ابتدا غلظت‌های ۵، ۱۰، ۲۵ و ۵۰ mg/L آنتی‌بیوتیک از محلول مادر ساخته شدند. pH نمونه‌ها با استفاده از اسید و باز ۰/۱ N بر روی pH مطلوب تنظیم شد. از ۵۰ mMol/L سدیم سولفات به عنوان الکترولیت استفاده شد. در جریان‌های الکتریکی و غلظت گاز ازن مطلوب، کارایی فرایند سنجیده شد و غلظتی که در آن بالاترین کارایی به دست آمد انتخاب شد. جهت تعیین تاثیر پارامترها بر کارایی فرایند، ۱۵ مرحله و ۹۱ نمونه آزمایش انجام شد. در نهایت با استفاده از معادله ۳، میزان غلظت باقیمانده آنتی‌بیوتیک، COD و TOC تعیین شد.

$$E(\%) = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad (3)$$

E: کارایی (درصد)، C_0 : غلظت آنتی‌بیوتیک، COD و TOC در زمان صفر، C_e : غلظت آنتی‌بیوتیک، COD و TOC بعد از فرایند.

- مطالعات تکمیلی:

مقدار تولید هیدروژن پراکساید و رادیکال هیدروکسیل در فرایند الکتروپراکسون در محلول حاوی ۰/۵ mol سولفات سدیم تعیین شد. برای به دست آوردن غلظت هیدروژن پراکساید از روش اگزالیک تیتانیوم (IV) پتاسیم (۱۵) و اندازه‌گیری میزان رادیکال هیدروکسیل براساس روش به دام انداختن اسید تری فتالیک و تولید ترکیب فلوریانس

یافته‌ها

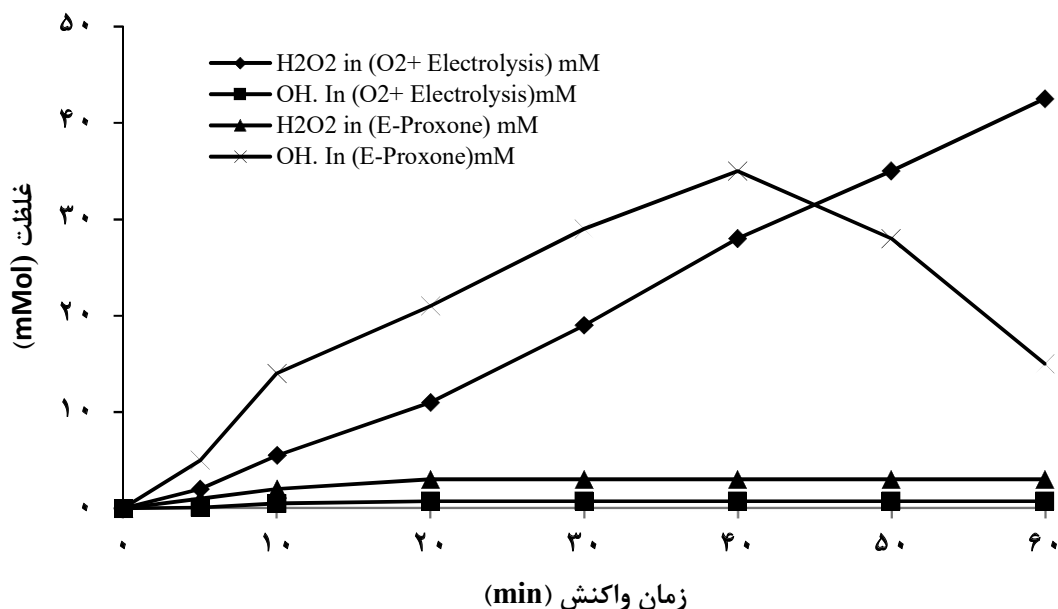
- تعیین مقدار تولید هیدروژن پراکساید و رادیکال هیدروکسیل در فرایند الکتروپراکسون:

بیشترین مقدار هیدروژن پراکساید تولیدی هنگامی بود که دستگاه مولد ازن خاموش و تنها گاز اکسیژن به همراه جریان الکتریکی با جریان ۳ A وارد محفظه واکنش گردید. در این حالت در مدت زمان ۶۰ min حدود ۴۵ mMol/L هیدروژن پراکساید تولید شد که دارای رابطه نسبتاً خطی با زمان واکنش بود. بیشترین مقدار رادیکال هیدروکسیل نیز زمانی تولید شد که میزان دبی ازن ورودی ۵ mg/L.min، جریان الکتریکی ۳ A بود که در مدت زمان ۴۰ min مقدار ۳۵ mMol/L رادیکال هیدروکسیل تولید شد و با افزایش زمان تماس میزان رادیکال هیدروکسیل کاهش یافت (نمودار ۱).

هیدروکسی تری فتالیک اسید (۱۶) صورت گرفت. همچنین در بخش دیگر مطالعه، سینتیک فرایند (معادله ۴) (۱۷)، اثر هم‌افزایی پارامترها (۱۸)، تاثیر حضور رباینده رادیکال (۱۹) و میزان کارایی فرایند در حذف COD و TOC (۲۰) تعیین شد. غلظت سفتریاکسون با استفاده از دستگاه HPLC، میزان مقادیر COD با دستگاه اسپکتروفتومتر (DR6000) و روش استاندارد (Close Reflex) و TOC با استفاده از آنالیزر براساس روش ارائه شده در مرجع آزمایشات آب و فاضلاب اندازه‌گیری شد. در این مرحله نیز ۱۳ مرحله آزمایش انجام شد.

$$\ln C = \ln C_0 + k_1 t \quad (4)$$

C و C₀: غلظت نهایی و اولیه آنتی‌بیوتیک سفتریاکسون، t: زمان واکنش و k₁: ضریب واکنش.



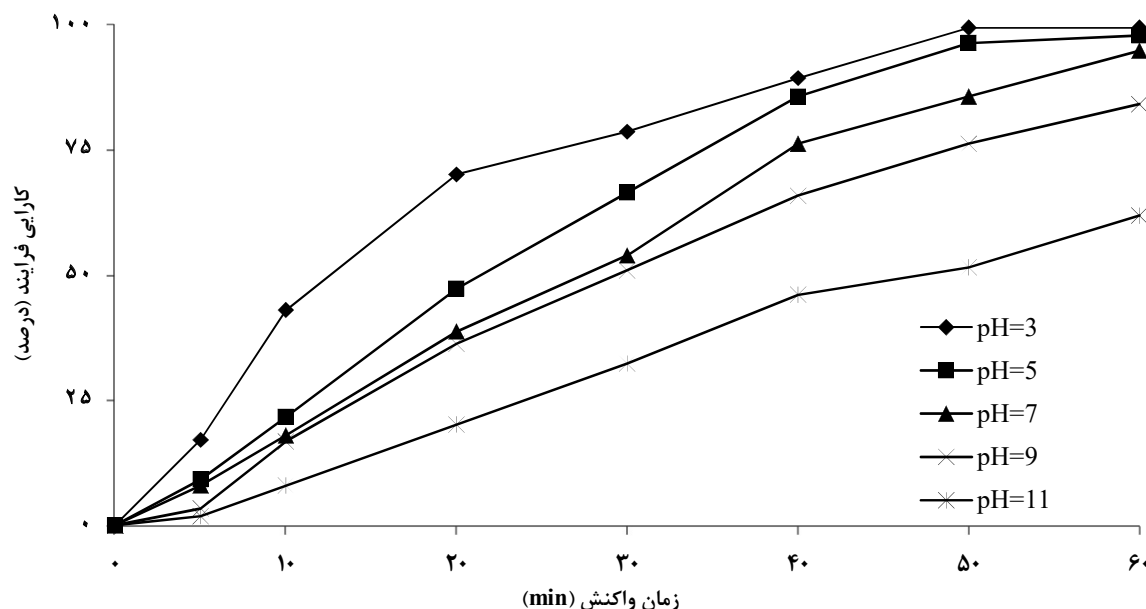
نمودار ۱- مقدار هیدروژن پراکساید و رادیکال هیدروکسیل تولیدی

(غلظت سفتریاکسون = ۱۰ mg/L، غلظت ازن برابر با ۵ mg/L.min، جریان الکتریکی ۳ A، سدیم سولفات = ۵۰ mMol/L)

- تعیین تاثیر pH محیط و زمان واکنش بر کارایی فرایند: در این بخش، تاثیر pH اولیه محلول بر کارایی فرایند مورد بررسی قرار گرفت. در این مرحله pH اولیه ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۱ در نظر گرفته شد. مقادیر غلظت اولیه آنتی بیوتیک سفتریاکسون ۱۰ mg/L، غلظت ازن ۳ mg/L.min، غلظت سولفات سدیم برابر با ۵۰ mMol/L و جریان الکتریکی ۲ A بود. جهت تعیین زمان بهینه فرایند نمونه برداری از زمان شروع فرایند تا ثابت شدن کارایی تجزیه صورت گرفت. نتایج بیانگر تجزیه مناسب در pH های مختلف است بطوری که در pH برابر با ۳ کارایی فرایند ۹۹/۳۹ و در pH برابر با ۷ کارایی فرایند ۹۴/۸۹ درصد است و پایین ترین کارایی به pH برابر ۱۱ اختصاص دارد که ۶۱ درصد است (نمودار ۲). نتایج آنالیز واریانس ($F=3/65$ و $p=0/019$) بیانگر آن است که pH بر کارایی حذف سفتریاکسون تاثیر گذار

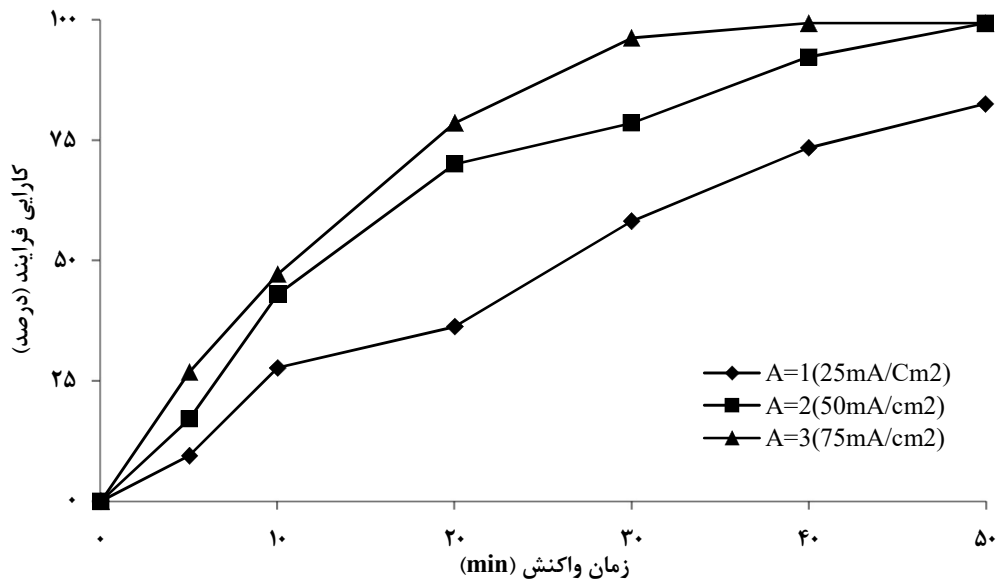
بوده است.

- تعیین تاثیر میزان جریان الکتریکی بر کارایی فرایند: در این بخش، تاثیر جریان الکتریکی در مقادیر ۱، ۲ و ۳ A مورد بررسی قرار گرفت. غلظت سفتریاکسون برابر با ۱۰ mg/L، غلظت ازن برابر با ۳ mg/L.min، غلظت سولفات سدیم برابر با ۵۰ mMol/L و pH برابر با ۳ لحاظ گردید. با افزایش جریان مستقیم الکتریکی در محفظه واکنش از ۱ به ۳ A، کارایی فرایند از ۷۳/۴۷ به ۹۹/۳۹ درصد در مدت زمان ۴۰ min افزایش یافت (نمودار ۳). نتایج آنالیز واریانس ($F=3/13$ و $p=0/013$) بیانگر آن است که جریان الکتریکی بر کارایی حذف سفتریاکسون تاثیر گذار بوده است.

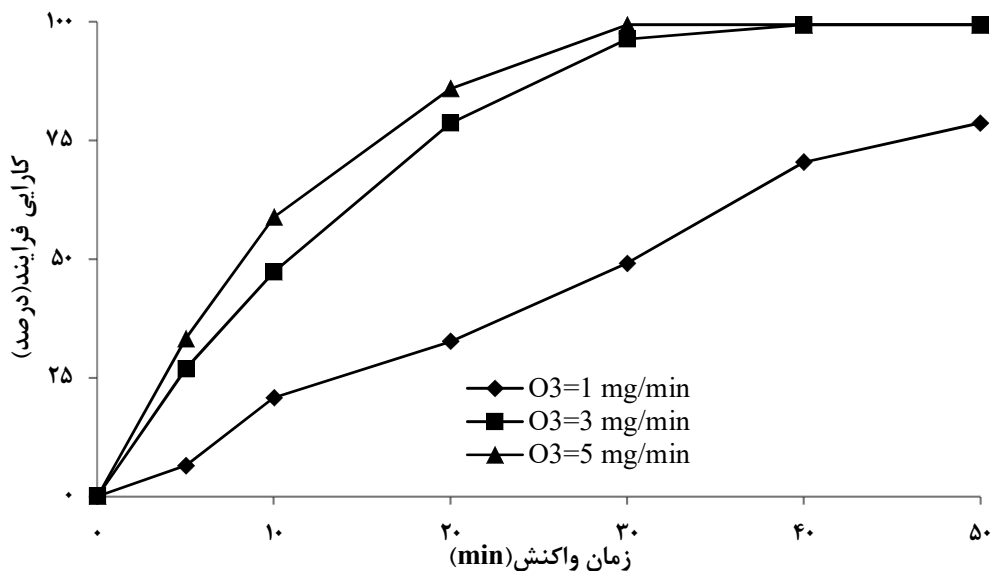


نمودار ۲- تعیین تاثیر pH محلول بر کارایی فرایند الکتروپراکسون

(غلظت سفتریاکسون = ۱۰ mg/L، غلظت ازن = ۳ mg/L.min، جریان = ۲ A، سدیم سولفات = ۵۰ mMol/L)



نمودار ۳- تعیین تاثیر جریان الکتریکی مستقیم بر کارایی فرایند الکتروپراکسون
 (غلظت سفتریاکسون = ۱۰ mg/L، غلظت ازن = ۳ mg/L.min، pH = ۳، سدیم سولفات = ۵۰ mMol/L)



نمودار ۴- تعیین تاثیر غلظت ازن بر کارایی فرایند الکتروپراکسون
 (غلظت سفتریاکسون = ۱۰ mg/L، جریان الکتریکی = ۳ A، pH = ۳، سدیم سولفات = ۵۰ mMol/L)

نتایج آنالیز واریانس ($F=3/45$ و $p=0/031$) بیانگر آن است که غلظت اولیه آنتی بیوتیک بر کارایی حذف سفتریاکسون تاثیرگذار بوده است.

در نهایت می توان گفت که pH برابر با ۳، دبی ازن ورودی برابر با ۵ mg/L.min، شدت جریان الکتریکی برابر با A ۳، غلظت ۵ mg/L سفتریاکسون و زمان ۲۰ min به عنوان شرایط بهینه تجزیه آنتی بیوتیک سفتریاکسون انتخاب شد.

- تعیین اثر هم افزایی و حضور رباینده رادیکال بر کارایی فرایند:

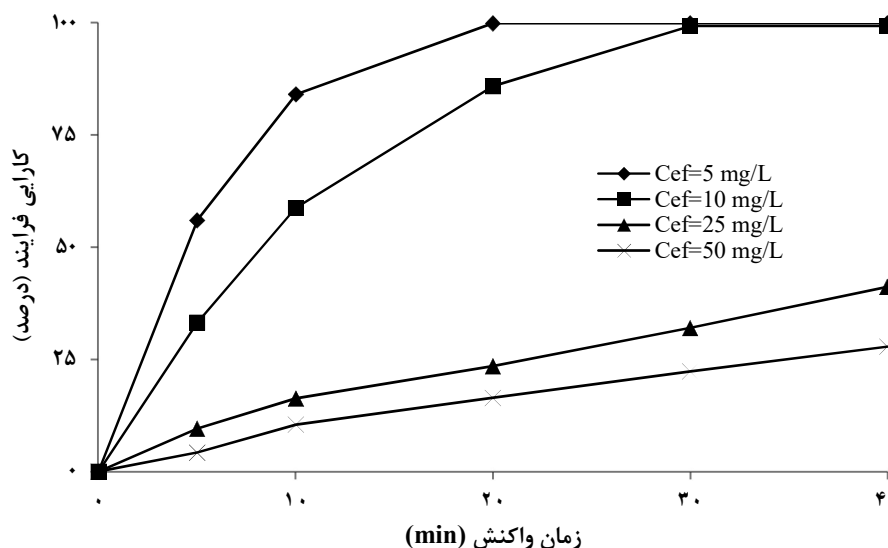
در این بخش، در شرایط بهینه فرایند، تاثیر نوع الکترولیت، اثرگذاری فرایند ازن زنی ساده و فرایند الکترولیز به صورت جداگانه و همچنین حضور ترت بوتانول به عنوان شاخص رباینده رادیکال مورد بررسی قرار گرفت. فرایند ازن زنی ساده و فرایند الکترولیز در شرایط بهینه فرایند به ترتیب ۴۷ و ۱۸ درصد از آنتی بیوتیک سفتریاکسون را حذف می نماید. حضور ترت بوتانول در غلظت ۲۰ mMol/L نیز باعث کاهش کارایی فرایند به ۷۵ درصد شد.

- تعیین تاثیر غلظت ازن بر کارایی فرایند:

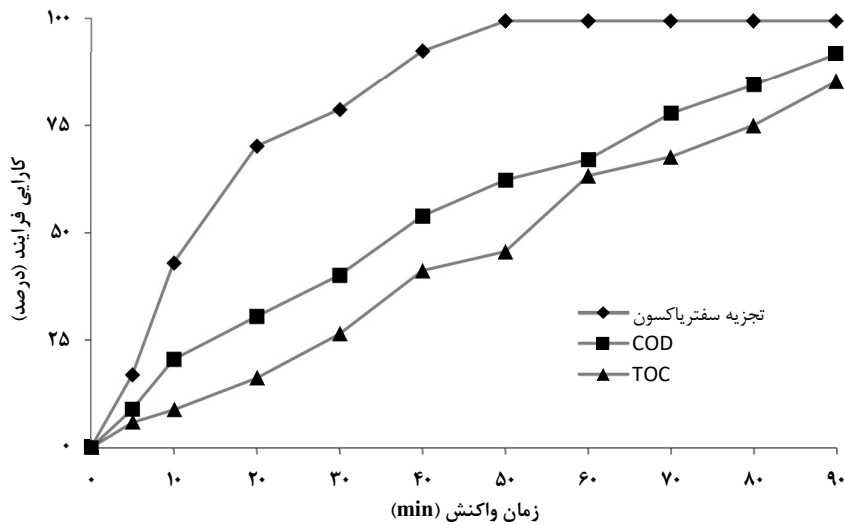
در این بخش، تاثیر تغییر غلظت ازن در مقادیر ۱، ۳ و ۵ mg/L.min بر کارایی فرایند مورد بررسی قرار گرفت. در این بخش غلظت سفتریاکسون برابر با ۱۰ mg/L، غلظت سولفات سدیم برابر با ۵۰ mMol/L، جریان الکتریکی A ۳ و pH برابر با ۳ در نظر گرفته شد. با افزایش غلظت ازن ورودی از ۱ به ۵ mg/L.min کارایی فرایند از ۴۹/۰۸ به ۹۹/۳۹ درصد در مدت زمان ۳۰ min افزایش یافت (نمودار ۴). نتایج آنالیز واریانس ($F=4/09$ و $p=0/023$) بیانگر آن است که گاز ازن بر کارایی حذف سفتریاکسون تاثیرگذار بوده است.

- تعیین تاثیر غلظت اولیه سفتریاکسون بر کارایی فرایند:

در این بخش، تاثیر غلظت های ۵، ۱۰، ۲۵ و ۵۰ mg/L سفتریاکسون مورد بررسی قرار گرفت. غلظت ازن برابر با ۵ mg/L.min، جریان الکتریکی برابر با A ۳، غلظت سولفات سدیم برابر با ۵۰ mMol/L در نظر گرفته شد. کارایی فرایند با افزایش غلظت سفتریاکسون از ۵ mg/L به ۵۰ mg/L از ۱۰۰ به ۳۱ درصد کاهش پیدا کرد (نمودار ۵).



نمودار ۵- تعیین تاثیر غلظت سفتریاکسون بر کارایی فرایند الکتروپراکسون (غلظت ازن = ۵ mg/L.min، جریان الکتریکی = A ۳، pH = ۳، سدیم سولفات = ۵۰ mMol/L)



نمودار ۶- تعیین میزان کاهش COD، TOC و تجزیه سفتریاکسون طی شرایط بهینه فرایند الکتروپراکسون

(غلظت ازن = ۵ mg/L.min، جریان الکتریکی = ۳ A، pH = ۳، سدیم سولفات = ۵۰ mMol/L، غلظت سفتریاکسون = ۵ mg/L)

جدول ۲- سینتیک فرایند الکتروپراکسون در شرایط بهینه

(غلظت ازن = ۵ mg/L.min، جریان الکتریکی = ۳A، pH = ۳، سدیم سولفات = ۵۰ mMol/L، غلظت سفتریاکسون = ۵ mg/L)

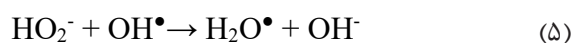
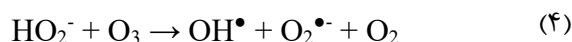
سینتیک درجه دوم		سینتیک درجه اول		سینتیک درجه صفر		غلظت آلاینده (mg/L)
R ²	معادله	R ²	معادله	R ²	معادله	
۰/۴۴	Y=0.013X + 0.6	۰/۹۷	Y = -0.02X + 0.84	۰/۷۸	Y = 0.06X + 0.7	۵
۰/۴۶	Y=0.0079X + 0.3	۰/۹۴	Y=-0.0097X + 0.37	۰/۴۵	Y=0.005X + 0.3	۱۰
۰/۶۷	Y= 0.054x + 2.2	۰/۸۸	Y= -0.0343x + 2.2	۰/۶۷	Y=0.023x + 2.2	۲۵
۰/۸۱	Y=0.045x + 2.8	۰/۸۳	Y=-0.0393x + 2.8	۰/۶۳	Y=0.016x + 2.8	۵۰

بحث

در فرایندهای AOPs، تغییرات pH از طریق تولید رادیکال‌های متنوع بر میزان اکسیداسیون تاثیرگذار است (۲۱). در شروع فرایند الکتروپراکسون، pH محیط طبق واکنش‌های صورت گرفته و تولید یون هیدروژن در سطح الکتروکاتد به سمت pH بسیار اسیدی پیش رفت بنابراین برای تعیین تاثیر pH محیط از بافر فسفات جهت ثابت نگهداشتن pH استفاده شد. نتایج بیانگر نزدیک

-تعیین کارایی فرایند در کاهش COD و TOC و تعیین سینتیک فرایند:

در این بخش، ابتدا مقادیر COD و TOC ایجاد شده توسط آنتی‌بیوتیک سفتریاکسون با غلظت ۱۰ mg/L تعیین شد و در ادامه کارایی فرایند در کاهش این پارامترها مورد سنجش قرار گرفت (نمودار ۶). در بخش دیگر مطالعه، سرعت انجام فرایند براساس سینتیک‌های درجه صفر، درجه اول و درجه دوم مورد بررسی قرار گرفت (جدول ۲).



همان‌گونه که نتایج نشان داد با افزایش اعمال جریان الکتریکی مستقیم به سطح الکترودها، کارایی فرایند افزایش یافت (از ۷۳ به ۹۹ درصد). جهت توصیف این امر باید به افزایش تولید الکتریکی H_2O_2 در سطح الکتروکاتد و متعاقباً افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل از واکنش بین ازن و H_2O_2 اشاره کرد. همچنین اکسیداسیون آندی و الکترولیز صورت گرفته در سطح الکترودها و انجام اکسیداسیون مستقیم آلاینده توسط الکترولیز و اکسیداسیون آندی یکی دیگر از دلایلی است که باعث افزایش کارایی با افزایش شدت جریان الکتریکی اعمال شده به سطح الکتروکاتد می‌گردد (۲۸، ۲۹). از سویی نتایج نشان می‌دهد که فرایند تولید هیدروژن پراکساید به‌صورت الکتروشیمیایی، فرایندی افزایشی با گذشت زمان است بنابراین فاکتور تولید هیدروژن پراکساید، عمل کند شدن افزایش کارایی نیست و آنچه محدود کننده این موضوع است، محدودیت انتقال مولکول ازن از فاز گازی به فاز محلول است (۲۹). همچنین در صورت انحلال پایین ازن در محلول، هیدروژن پراکساید کمتری به رادیکال هیدروکسیل تبدیل می‌شود و هیدروژن پراکساید دست نخورده در محلول باقی می‌ماند و از آنجایی که هیدروژن پراکساید اکسید کننده قوی نیست، کارایی فرایند کاهش می‌یابد (۲۴). طی مطالعه Bakheet و همکاران، بالاترین میزان حذف رنگ اسید نارنجی را در 500 mA گزارش کرده‌اند (۱۳). براساس تئوری انتقال جرم، افزایش میزان دبی ورودی ازن به محفظه واکنش باعث افزایش غلظت ازن محلول در محیط می‌گردد و از آنجایی که ازن دارای نقش‌های مختلف از قبیل اکسیداسیون مستقیم، تولیدکننده رادیکال‌های هیدروکسیل بر اثر تجزیه و یا واکنش با هیدروژن پراکساید و انجام اکسیداسیون غیرمستقیم است، می‌بایست با افزایش

بودن کارایی فرایند در حذف سفتریاکسون در pHهای ۳، ۵ و ۷ بود که کارایی بالای ۹۰ درصد به‌دست آمد. اما با افزایش pH، کارایی کاهش یافت. طبق مطالعات صورت گرفته در فرایند ازن‌زنی متداول، با افزایش pH محیط به محدوده قلیایی، مولکول ازن با یون هیدروکسیل در محیط واکنش داده و تولید ترکیب HO_2^- می‌نماید (معادله ۳). سپس این ترکیب طبق معادله ۴ با مولکول ازن واکنش داده و تولید رادیکال هیدروکسیل می‌کند (۲۲). اما در فرایند الکتروپراکسون به‌دلیل تولید الکتروشیمیایی $\text{H}_2\text{O}_2/\text{HO}_2^-$ (معادلات ۱ و ۲)، تشکیل HO_2^- از واکنش بین یون هیدروکسیل با مولکول ازن (معادله ۵) به‌عنوان یک واکنش جانبی محسوب می‌شود که باعث کاهش کارایی ازن محلول در محیط واکنش شده و میزان واکنش با H_2O_2 و HO_2^- کاهش می‌یابد و در نتیجه رادیکال هیدروکسیل کمتری تولید می‌شود (۲۳، ۲۴). از سویی دیگر به‌دلیل کاهش ازن محلول و افزایش میزان HO_2^- نسبت به ازن در محیط، HO_2^- به‌عنوان رادیکال اسکونجر عمل کرده و با آلاینده در مصرف رادیکال هیدروکسیل رقابت می‌نماید مهمترین نکته درباره این فرایند، این است که کارایی فرایند در محدوده گسترده‌ای از pH مطلوب است و از آنجایی که پساب‌های صنایع دارای pH متنوعی هستند بنابراین می‌توان از این فرایند در تصفیه این پساب‌ها استفاده نمود (۲۵). طبق مطالعه Xiang و همکاران بر روی حذف ترکیبات دارویی ایوبروفن مشخص شد که کارایی فرایند الکتروپراکسون در رنج وسیعی از pH مناسب است. اما بالاترین کارایی pH در pH اسیدی (pH=۵/۲) تعیین شد (۲۶). همچنین مطالعه Kermani و همکاران در سال ۲۰۱۸ بر روی تجزیه ترکیب آلی 2,4-D بیانگر تاثیر گذاری pH بر کارایی فرایند بود. در این مطالعه کارایی فرایند در pH اسیدی (pH=۵/۶) بالاترین مقدار بود. در سایر pHها نیز کارایی فرایند نزدیک به pH اسیدی بوده است (۲۷).



مجزا دارای راندمان خیلی پایین تری نسبت به استفاده توام پارامترها هستند و ۴۴ درصد اثر هم‌افزایی در نتایج حاصل شد. نتایج حاصل از مطالعه با مطالعه Ding و همکاران در سال ۲۰۱۹ همخوانی دارد. در مطالعه مذکور با افزایش غلظت آلاینده‌ها، کارایی فرایند از ۱۰۰ درصد به ۶۳ درصد کاهش پیدا کرده است (۳۷). حضور رایبند‌های رادیکال در فرایندهای AOPs که تولیدکننده رادیکال اکسیدکننده هستند یکی از مواردی است که باید مورد بررسی قرار گیرد. نتایج بیانگر این موضوع است که حضور این عوامل باعث مصرف رادیکال‌های اکسیدکننده و در نتیجه ایجاد رقابت با آلاینده مورد بررسی شد. ترکیب ترت بوتیل اتانول بعنوان مصرف کننده بسیار قوی رادیکال‌های اکسید کننده است که نسبت به سایر عوامل رایبند رادیکال با سرعت بالاتری ($k_{OH}^{[z.rad]} = 5 \times 10^8 M^{-1} S^{-1}$) وارد واکنش می‌گردد. در پی واکنش ترت بوتیل الکل با رادیکال‌های اکسیدکننده، ترکیبات واسطی تولید خواهد شد که موجب خاتمه یافتن واکنش‌های زنجیره رادیکالی می‌گردد. این ماده به‌علت دارا بودن اثر رایبندگی قوی، به‌عنوان یک شاخص بسیار مناسب جهت واکنش‌های رادیکالی در نظر گرفته می‌شود. در حضور عوامل رایبند رادیکال، به‌علت وجود عوامل مداخله‌گر، ازن قادر به واکنش با گروه‌های هیدروکسیل نخواهد بود و در نتیجه واکنش‌های بعدی جهت تولید رادیکال‌های فعال مختل و کارایی حذف ماده آلی مورد نظر کاهش خواهد یافت (۳۸). Yao و همکاران طی مطالعه به بررسی حذف ژئوزمین و متیل ایزوبرونیل در حضور ترت بوتیل الکل به‌عنوان رایبند رادیکال هیدروکسیل پرداخته‌اند. براساس نتایج این مطالعه حضور ترت بوتیل الکل باعث کاهش کارایی حذف از ۹۰ به ۵۵ درصد شده است (۳۹). یکی از روش‌های ساده، کم هزینه و در عین حال سریع در راستای تعیین میزان معدنی‌سازی، آزمون COD است. همچنین استفاده از آزمون TOC می‌تواند به تعیین موثر بودن کارایی فرایند کمک بسیاری نماید. در این مطالعه به دلیل ساختار خاص آنتی‌بیوتیک مورد

غلظت ازن به راکتور، افزایش کارایی فرایند حاصل شود که نتایج به‌دست آمده تاییدکننده این امر است (۲۵، ۳۰). نتایج ارائه شده در مطالعه Yuan و همکاران مشخص نمود که بالاترین میزان حذف آلاینده (۸۵ درصد از رنگ‌زای متیلن بلو) در غلظت ازن برابر با ۷۵ mg/L رخ داده است (۳۱). Wang و همکاران طی مطالعه‌ای که بر روی 1,4-dioxane توسط فرایند الکتروپراکسون انجام داده‌اند، بالاترین کارایی حذف را در دوز ازن برابر با ۱۱۳ mg/L تعیین کرده‌اند (۳۲). از آنجایی که غلظت آنتی‌بیوتیک‌ها در منابع آبی، در مقادیر مختلف یافت می‌شود، بنابراین تعیین تاثیر غلظت اولیه بر کارایی فرایند و انتخاب روش مناسب امری ضروری است (۳۳). بدیهی است که با افزایش غلظت آلاینده در محیط باعث افزایش مصرف رادیکال هیدروکسیل و مولکول ازن می‌شود. کاهش راندمان حذف، با افزایش غلظت آلاینده را می‌توان این‌گونه تفسیر نمود که در شرایطی که غلظت ازن و جریان الکتریکی ثابت است، بنابراین میزان توانایی اکسیداسیون مستقیم و غیرمستقیم آلاینده توسط فرایند ثابت است. در این حالت غلظت اولیه آلاینده که به‌عنوان مصرف کننده عوامل اکسیدکننده است، افزایش می‌یابد در نتیجه تجزیه آلاینده در غلظت‌های بالا به‌دلیل حضور بیشتر آلاینده در محیط، به‌صورت کامل صورت نمی‌گیرد و باعث کاهش راندمان و تولید محصولات حد واسط می‌گردد (۳۴). نتایج به‌دست آمده از این مطالعه با نتایج مطالعه Ding و همکاران در سال ۲۰۱۶ (۳۵) و Karaolia و همکاران در سال ۲۰۱۸ (۳۶) همخوانی دارد. مطالعه تاثیر پارامترهای دخیل در مطالعه می‌تواند به خوبی رابطه متقابل بین پارامترها را مشخص نماید. در این مطالعه پارامترهای ازن به‌عنوان عامل اکسیدکننده مستقیم و عامل فعال‌سازی رادیکال هیدروکسیل و فرایند الکترولیز به‌عنوان عامل اکسیداسیون آندی و تولید هیدروژن پراکساید و رادیکال هیدروکسیل، به‌عنوان اصلی‌ترین پارامترهای تاثیرگذار بر فرایند محسوب می‌شوند. نتایج نشان داد که هر یک از پارامترها به‌صورت

سفتریاکسون شد. در این مطالعه، کارایی فرایند در pH اسیدی بالاتر به دست آمد اما سایر pHها دارای کارایی نزدیک به pH مطلوب گزارش شد. همچنین با افزایش غلظت گاز ازن تا محدوده خاص و جریان الکتریکی به دلیل انجام اکسیداسیون مستقیم (از ناسیون و الکترولیز) و افزایش تولید رادیکال‌های هیدروکسیل و سوپراکساید، کارایی فرایند افزایش پیدا کرده است. غلظت آنتی‌بیوتیک یکی از مواردی است که باید مورد توجه قرار گیرد. افزایش غلظت آلاینده باعث کاهش کارایی می‌شود. همچنین برای حذف بالاتر COD و TOC نیازمند صرف زمان بیشتری است. هزینه‌های انرژی و راهبری نسبتاً تخصصی از جمله نقاط ضعف این فرایند است. همچنین برای کاربرد صنعتی نیازمند انجام مطالعات در مقیاس واقعی است.

ملاحظات اخلاقی

نویسندگان، کلیه نکات اخلاقی شامل عدم سرقت ادبی، انتشار دوگانه، تحریف داده‌ها و داده‌سازی را در این مقاله رعایت کرده‌اند.

تشکر و قدردانی

این مقاله حاصل طرح تحقیقاتی با عنوان "بررسی کارایی فرایند الکتروپراکسون در تجزیه آنتی‌بیوتیک سفتریاکسون از محیط‌های آبی" مصوب دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی، درمانی همدان در سال ۱۳۹۳ (به شماره قرارداد ۹۳۰۴۳۱۲۱۹۸) است که با حمایت دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی، درمانی همدان اجرا شده است که نویسندگان مقاله کمال تشکر و قدردانی را دارند.

References

1. Szymańska U, Wierowski M, Sołtyszewski I, Kuzemko J, Wierowska G, Woźniak MK. Presence of antibiotics in the aquatic environment in Europe and their analytical monitoring: Recent trends and perspectives. *Microchemical Journal*. 2019;147:729-40.
2. Sacco O, Vaiano V, Rizzo L, Sannino D. Intensification of ceftriaxone degradation under UV and solar light irradiation in presence of phosphors based structured catalyst. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*. 2019;137:12-21.
3. Khani M, Mahvi A, Zazouli M, Yousefi Z, Dadban

مطالعه و حضور حلقه‌های آروماتیک در ساختمان این ترکیب بدیهی است که کارایی فرایند در حذف COD و TOC کمتر و فرایند با سرعت کندتری صورت گیرد. در اکثر مطالعات انجام شده، میزان حذف COD و TOC در کنار حذف آلاینده مورد بررسی قرار گرفته است. در مطالعه Samarghandi و همکاران، میزان حذف آنتی‌بیوتیک سفازولین، COD و TOC به ترتیب ۹۲، ۵۵ و ۴۲ درصد گزارش شده است (۴۰). در تمامی فرایندها جهت پی‌بردن به روند انجام واکنش حذف آلاینده؛ مطالعه سینتیک واکنش انجام می‌شود (۴۱). این بخش از مطالعه به مدلسازی و اجرای بهتر فرایند در مقیاس کاربردی کمک خواهد نمود. در این مطالعه جهت مطالعه سینتیک واکنش از سه مدل سینتیک درجه صفر؛ درجه اول و درجه دوم استفاده شد که نتایج مربوط به سینتیک‌ها در جدول ۲ ارائه شده است. همانگونه که مشاهده می‌شود سینتیک واکنش در فرایند مورد مطالعه از سینتیک درجه اول تبعیت می‌کند. نتایج مطالعه با مطالعه Kumar و همکاران (۴۲) همخوانی دارد.

نتیجه‌گیری

از آنجایی که فرایندهای متداول تصفیه آب و فاضلاب توانایی بالایی در حذف ترکیبات آلی مقاوم مانند آنتی‌بیوتیک‌ها را ندارند بنابراین لزوم استفاده از فرایندهای پیشرفته امری ضروری به نظر می‌رسد. فرایند الکتروپراکسون، به‌عنوان یک فرایند اکسیداسیون پیشرفته به دلیل بهره‌بردن از مکانیسم‌های اکسیداسیون مستقیم و غیرمستقیم دارای کارایی بالا و عدم تولید محصولات جانبی، باعث تجزیه

- Shahamat Y. Investigating the treatment and mineralization of olive oil mill wastewater by using electrocoagulation and novel various advanced oxidations: a kinetic study. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2019;12(1):47-62 (in Persian).
4. Li M-f, Liu Y-g, Zeng G-m, Liu N, Liu S-b. Graphene and graphene-based nanocomposites used for antibiotics removal in water treatment: A review. *Chemosphere*. 2019;226:360-80.
 5. Kamani H, Panahi A, Ashrafi S, Kord Mostafapour F, Omrani Gargari N. Efficiency evaluation mesopore silica nanoporous materials in removal of cephalexin from aqueous solution by response surface methodology. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2017;10(3):349-62 (in Persian).
 6. Marcelino RB, Leão MM, Lago RM, Amorim CC. Multistage ozone and biological treatment system for real wastewater containing antibiotics. *Journal of Environmental Management*. 2017;195:110-16.
 7. Derco J, Koman M. *Ozone in Nature and Practice*. London, UK: IntechOpen; 2018.
 8. Lee Y, Gerrity D, Lee M, Gamage S, Pisarenko A, Trenholm RA, et al. Organic contaminant abatement in reclaimed water by UV/H₂O₂ and a combined process consisting of O₃/H₂O₂ followed by UV/H₂O₂: prediction of abatement efficiency, energy consumption, and byproduct formation. *Environmental Science & Technology*. 2016;50(7):3809-19.
 9. Abbasi S. Photocatalytic removal of methyl orange in suspension containing ZnO and SnO₂ nanoparticles and investigation the influence of effective variables on the process. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2016;9(3):433-42 (in Persian).
 10. Wang H, Zhan J, Yao W, Wang B, Deng S, Huang J, et al. Comparison of pharmaceutical abatement in various water matrices by conventional ozonation, peroxone (O₃/H₂O₂), and an electro-peroxone process. *Water Research*. 2018;130:127-38.
 11. Li Z, Yuan S, Qiu C, Wang Y, Pan X, Wang J, et al. Effective degradation of refractory organic pollutants in landfill leachate by electro-peroxone treatment. *Electrochimica Acta*. 2013;102:174-82.
 12. Abdul Aziz H, Abu Amr SS. *Advanced Oxidation Processes (AOPs) in Water and Wastewater Treatment*. Pennsylvania, USA: IGI Global; 2019.
 13. Bakheet B, Yuan S, Li Z, Wang H, Zuo J, Komarneni S, et al. Electro-peroxone treatment of Orange II dye wastewater. *Water Research*. 2013;47(16):6234-43.
 14. Mao Y, Guo D, Yao W, Wang X, Yang H, Xie YF, et al. Effects of conventional ozonation and electro-peroxone pretreatment of surface water on disinfection by-product formation during subsequent chlorination. *Water Research*. 2018;130:322-32.
 15. Lim J, Hoffmann MR. Substrate oxidation enhances the electrochemical production of hydrogen peroxide. *Chemical Engineering Journal*. 2019;374:958-64.
 16. Luo S, Wei Z, Spinney R, Yang Z, Chai L, Xiao R. A novel model to predict gas-phase hydroxyl radical oxidation kinetics of polychlorinated compounds. *Chemosphere*. 2017;172:333-40.
 17. MehrAlipour J, Dayari A, Rezaei VH, Samarghandi M, Azizi F. Optimization of electro-peroxone via response surface statistical model in decolorization of acid orange 7 dye from synthetic wastewater. *Journal of Color Science and Technology*. 2017;10(4):247-58 (in Persian).
 18. Samarghandi M, Shabanlo A, Nazari E, Sadri M, Mehralipour J. Efficiency of electro/persulfate (EPS) process in degrading high concentrations of ceftriaxone in pharmaceutical effluents. *Water and Wastewater Journal*. 2016;27(4):15-25 (in Persian).
 19. Samarghandi M, Shahbazi Z, Bahadori R, Mehralipour S, Chavoshi S, Khanmohammadi S, et al. The ability of sulfate radicals activated by ozone molecules in degradation of sodium dodecyl sulphate as anionic detergent (SDBS) from synthetic effluent. *Journal of Health*. 2019;9(5):496-509 (in Persian).
 20. Samarghandi MR, Shahbazi Z, Bahadori R, Mehralipour J, Miveh ZA. The survey of ultrasound-electrocoagulation process in removal of Ciprofloxacin from aqueous through central composite design. *Journal of Health in the Field*. 2018;6(1):9-19 (in Persian).
 21. Martínez-Pachón D, Espinosa-Barrera P, Rincón-Ortiz J, Moncayo-Lasso A. Advanced oxidation of antihypertensives losartan and valsartan by photo-electro-Fenton at near-neutral pH using natural organic acids and a dimensional stable anode-gas

- diffusion electrode (DSA-GDE) system under light emission diode (LED) lighting. *Environmental Science and Pollution Research*. 2019;26(5):4426-37.
22. Wang H, Shen Y, Lou Z, Zhu N, Yuan H, Liu C. Hydroxyl radicals and reactive chlorine species generation via E⁺-ozonation process and their contribution for concentrated leachate disposal. *Chemical Engineering Journal*. 2019;360:721-27.
 23. Li X, Wang B, Wang Y, Li K, Yu G. Synergy effect of E-peroxone process in the degradation of structurally diverse pharmaceuticals: A QSAR analysis. *Chemical Engineering Journal*. 2019;360:1111-18.
 24. Kong F-x, Lin X-f, Sun G-d, Chen J-f, Guo C-m, Xie YF. Enhanced organic removal for shale gas fracturing flowback water by electrocoagulation and simultaneous electro-peroxone process. *Chemosphere*. 2019;218:252-58.
 25. Qu C, Lu S, Liang D, Chen S, Xiang Y, Zhang S. Simultaneous electro-oxidation and in situ electro-peroxone process for the degradation of refractory organics in wastewater. *Journal of Hazardous Materials*. 2019;364:468-74.
 26. Li X, Wang Y, Yuan S, Li Z, Wang B, Huang J, et al. Degradation of the anti-inflammatory drug ibuprofen by electro-peroxone process. *Water Research*. 2014;63:81-93.
 27. Kermani M, Mehralipour J, Kakavandi B. Photo-assisted electroperoxone of 2, 4-dichlorophenoxy acetic acid herbicide: Kinetic, synergistic and optimization by response surface methodology. *Journal of Water Process Engineering*. 2019;32:100971.
 28. Yang B, Deng J, Yu G, Deng S, Li J, Zhu C, et al. Effective degradation of carbamazepine using a novel electro-peroxone process involving simultaneous electrochemical generation of ozone and hydrogen peroxide. *Electrochemistry Communications*. 2018;86:26-29.
 29. Zheng H-S, Guo W-Q, Wu Q-L, Ren N-Q, Chang J-S. Electro-peroxone pretreatment for enhanced simulated hospital wastewater treatment and antibiotic resistance genes reduction. *Environment International*. 2018;115:70-78.
 30. Yao W, Fu J, Yang H, Yu G, Wang Y. The beneficial effect of cathodic hydrogen peroxide generation on mitigating chlorinated by-product formation during water treatment by an electro-peroxone process. *Water Research*. 2019;157:209-17.
 31. Yuan S, Li Z, Wang Y. Effective degradation of methylene blue by a novel electrochemically driven process. *Electrochemistry Communications*. 2013;29:48-51.
 32. Wang H, Bakheet B, Yuan S, Li X, Yu G, Murayama S, et al. Kinetics and energy efficiency for the degradation of 1,4-dioxane by electro-peroxone process. *Journal of Hazardous Materials*. 2015;294:90-98.
 33. Schafhauser BH, Kristofco LA, de Oliveira CMR, Brooks BW. Global review and analysis of erythromycin in the environment: occurrence, bioaccumulation and antibiotic resistance hazards. *Environmental Pollution*. 2018;238:440-51.
 34. Ahmed MB, Zhou JL, Ngo HH, Guo W. Adsorptive removal of antibiotics from water and wastewater: progress and challenges. *Science of the Total Environment*. 2015;532:112-26.
 35. Ding H, Wu Y, Zou B, Lou Q, Zhang W, Zhong J, et al. Simultaneous removal and degradation characteristics of sulfonamide, tetracycline, and quinolone antibiotics by laccase-mediated oxidation coupled with soil adsorption. *Journal of Hazardous Materials*. 2016;307:350-58.
 36. Karaolia P, Michael-Kordatou I, Hapeshi E, Drosou C, Bertakis Y, Christofilos D, et al. Removal of antibiotics, antibiotic-resistant bacteria and their associated genes by graphene-based TiO₂ composite photocatalysts under solar radiation in urban wastewaters. *Applied Catalysis B: Environmental*. 2018;224:810-24.
 37. Ding Y, Wang C, Yin F, Zhang X, Wu G, Tong S. Quantitative investigation of the synergistic effect of electrolysis combined with ozonation for degradation of nitrobenzene. *Ozone: Science & Engineering*. 2019;41(4):351-57.
 38. Dong H, Qiang Z, Hu J, Sans C. Accelerated degradation of iopamidol in iron activated persulfate systems: Roles of complexing agents. *Chemical Engineering Journal*. 2017;316:288-95.
 39. Yao W, Qu Q, von Gunten U, Chen C, Yu G, Wang Y. Comparison of methylisoborneol and geosmin abatement in surface water by conventional ozo-

- nation and an electro-peroxone process. *Water Research*. 2017;108:373-82.
40. Samarghandi M, Asgari G, Chavoshi S, Ghavami Z, Mehralipour J. Performance of catalytic ozonation by Fe/MgO nanoparticle for degradation of cefazolin from aqueous environments. *Journal of Mazandaran University of Medical Sciences*. 2015;25(128):77-90 (in Persian).
41. Liu Y, He X, Fu Y, Dionysiou DD. Degradation kinetics and mechanism of oxytetracycline by hydroxyl radical-based advanced oxidation processes. *Chemical Engineering Journal*. 2016;284:1317-27.
42. Kumar S, Singh S, Srivastava VC. Electro-oxidation of nitrophenol by ruthenium oxide coated titanium electrode: Parametric, kinetic and mechanistic study. *Chemical Engineering Journal*. 2015;263:135-43.



Available online: <http://ijhe.tums.ac.ir>

Original Article



Performance evaluation of electroproxone process in degradation of ceftriaxone pharmaceutical compound from synthetic solution

MR Samarghandi¹, AR Rahmani¹, Z Darabi², J Mehralipour^{3,4,*}

1-Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Hamadan University of Medical Science, Hamadan, Iran

2-Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Alborz University of Medical Science, Karaj, Iran

3-Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Iran University of Medical Science, Tehran, Iran

4-Student Research Committee, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran

ARTICLE INFORMATION:

Received: 16 October 2019

Revised: 6 January 2020

Accepted: 11 January 2020

Published: 18 March 2020

Keywords: Electroproxone process, Ceftriaxone antibiotic, Chemical oxygen demand, Total organic carbon, Synthetic solution

*Corresponding Author:

Jamalmehralipour@yahoo.com

ABSTRACT

Background and Objective: Electroproxone process is a combination of ozonation process and electrolysis in which the production of hydroxyl radical and ultimately degradation of a pollutant occurs. The aim of this study was to estimate the E-Proxone process in removing ceftriaxone from a synthetic solution.

Materials and Methods: In this experimental study, a semi-continuous reactor equipped with four graphene electrodes having 2×10 cm dimension and 3 mm thickness was used. The effect of pH (3-11), concentration of ozone gas (1-5 mg/min), direct electric current (1-3 A), initial concentration of ceftriaxone (5-50 mg/L) and radical scavenger dose (tertbutanol = 20 mmol/L) was studied in a 0-60 minutes reaction time. The Ceftriaxone concentration was measured by HPLC, COD was measured with spectrophotometer (DR6000) and TOC with a TOC analyzer.

Results: The results of this study indicated that this process had sufficient performance in the degradation of the antibiotic and diminishing of COD and TOC. The excellent condition was pH = 3, the electric current of 3 A, the ozone concentration of 5 mg/min, and the sodium sulfate as an electrolyte was 50 mmole/L. The ceftriaxone concentration was 5 mg/L in the duration of the 30 minutes experiment. 99.39% of the Ceftriaxone was destroyed. The process efficiency in COD and TOC removal was highest at 90 minutes. The presence of tertbutanol reduced the process efficiency to 83%.

Conclusion: The E-Proxone process, as one of the advanced oxidation processes, has the ability to reduce the pollution load of pharmaceutical industry, especially the ceftriaxone in this wastewater. This process is considered an environmentally friendly process.